

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2001年7月5日 (05.07.2001)

PCT

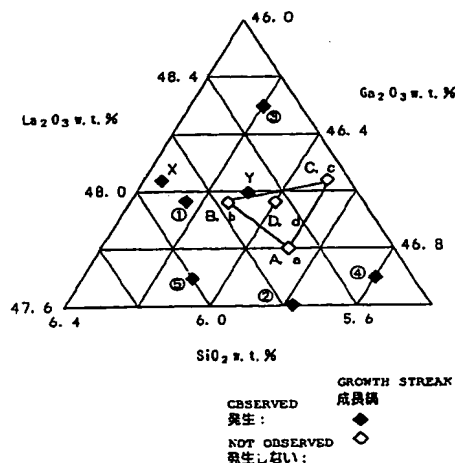
(10) 国際公開番号
WO 01/48276 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C30B 29/34, H03H 3/08, 9/25
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/09115
- (22) 国際出願日: 2000年12月21日 (21.12.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平 11/377335
1999年12月28日 (28.12.1999) JP
特願2000/1426 2000年1月7日 (07.01.2000) JP
特願2000/165114 2000年6月1日 (01.06.2000) JP
特願2000/165119 2000年6月1日 (01.06.2000) JP
特願2000/344038
2000年11月10日 (10.11.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱マテリアル株式会社 (MITSUBISHI MATERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒100-0004 東京都千代田区大手町1-5-1 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 王 守琦 (OH, Syuki) [-/JP]. 宇田 聡 (UDA, Satoru) [JP/JP]; 〒368-8503 埼玉県秩父郡横瀬町大字横瀬2270 Saitama (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ユーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: LANGASITE SINGLE CRYSTAL INGOT, SUBSTRATE FOR PIEZOELECTRIC DEVICE AND METHOD FOR MANUFACTURE THEREOF, AND SURFACE ACOUSTIC WAVE DEVICE

(54) 発明の名称: ランガサイト単結晶インゴット、圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイス



(57) Abstract: A langasite single crystal ingot being grown by pulling-up, characterized in that any part in the longitudinal and transverse cross sections of the straight part thereof except the shoulder part contains lanthanum oxide, gallium oxide and silica, which are constituent components thereof, in amounts of a range of ± 0.05 wt % of respective intended contents based on weight. The langasite ingot is excellent in the uniformity of the contents of the constituent components over the whole thereof except the shoulder

[続葉有]

WO 01/48276 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

part, and thus has various commercial advantages, for example, in application to a substrate for a piezoelectric device such as a surface acoustic wave filter, such as those that it contributes not only to the stability of properties of products, but also to the reduction of production cost.

(57) 要約:

ランガサイトの引上げ育成ランガサイト単結晶インゴットの肩部を除いた直胴部の縦断面および横断面における構成成分である酸化ランタン、酸化ガリウム、およびシリカの重量割合による含有量が、いずれの測定個所でも目標含有量に対して ± 0.05 重量%の範囲内にあり、構成成分含有量のインゴット全体に亘っての均一性にすぐれたものであるから、例えば弾性表面波フィルタなどの圧電デバイス用基板などへの適用に際しては、特性の安定化は勿論のこと、低コスト化にも寄与するなど工業上有用な特性を有する。

明細書

ランガサイト単結晶インゴット、圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイス

技術分野

本発明は、種結晶による引上げ育成初期に形成されたインゴット肩部を除いた残りのインゴット直胴部全体に亘って構成成分である酸化ランタン（以下、 La_2O_3 で示す）、酸化ガリウム（以下、 Ga_2O_3 で示す）、および酸化シリコン（以下、 SiO_2 で示す）の含有量のバラツキがきわめて小さい、構成成分含有量の均一性にすぐれたランガサイト単結晶インゴットに関するものであり、また、SAWフィルタ等に好適な圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイスに関するものである。

なお、本出願は、日本国への特許出願（特願平11-377335号、特願2000-001426号、特願2000-165114号及び特願2000-165119号）に基づくものであり、これらの日本出願の記載内容は本明細書の一部として取り込まれるものとする。

背景技術

近年、組成式： $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ （Langasite:ランガサイト）で表わされ、また重量割合で、

La_2O_3 : 48.04%、

Ga_2O_3 : 46.06%、

SiO_2 : 5.90%、

からなる組成を有するがランガサイトの単結晶が、

(a) 温度による弾性表面波伝搬速度の変化率が小さく、周波数の変化率が小さい、

(b) 圧電性の大小を表す電気機械結合係数（電気エネルギーと機械エネルギー

の相互変換効率を示す係数) が大きい、
などの特性をもつことから、例えば特開平 10-126209 号公報に記載されるように、弾性表面波 (Surface Acoustic Wave: SAW) フィルタなどの圧電デバイス用基板材料などとして注目され、研究が行われている (例えば、H. Takeda, K. Shimamura, V. I. Chani, T. Fukuda, Effect of starting melt composition on crystal growth of $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$, J. Crystal Growth 197 (1999) 204. 等)。すなわち、このランガサイト単結晶は、水晶と同等の温度特性を持ち、しかも電気機械結合係数が水晶の約 3 倍あり、携帯電話等に多用されている SAW フィルタの広帯域化と小型化を図ることが可能になる。

上記の基板材料などとしての適用に際しては、ランガサイト単結晶インゴットの種結晶による引上げ育成初期に形成されたインゴット肩部を除いた残りの直胴部をスライスして所定厚さのウェハーとした形で実用に供され、さらに前記ランガサイト単結晶インゴットが、ランガサイトの種結晶を引上げ軸の先端部に固定し、るつぽ内の所定組成を有するランガサイト融液の表面部に前記種結晶を当接した状態で、前記引上げ軸を回転させながら、引上げつつインゴット育成を行うことにより製造されることも知られている。

従来、このランガサイト単結晶を育成するには、化学量論比の組成に基づいた原料ペレットを融解して単結晶を育成していた。

一方、近年の単結晶引上げ育成技術の進歩はめざましく、かつ省エネ化および省力化、さらに低コスト化の要求も強く、これに伴い、ランガサイト単結晶インゴットは一段と大径化の傾向にあるが、上記の従来ランガサイト単結晶インゴットにおいては、インゴット全体に亘って構成成分である La_2O_3 、 Ga_2O_3 、および SiO_2 の含有量、特に Ga_2O_3 含有量にバラツキが生じ易く、特にこれを大径化した場合バラツキは一層顕著なものとなり、インゴット全体に亘って安定した組成の単結晶インゴットの育成はきわめて困難となるのが現状である。

また、化学量論的組成等の従来用いられている組成でランガサイト単結晶を育成すると、過飽和度の不連続に伴う成長速度の変動が組成の変動につながり、成長縞が生じるという不都合があった。このような結晶から切り出したウェハーの表面に成長縞が存在すると、機械的な強度のバラツキがあり、研磨加工すると凸凹

ができ、SAWフィルタの特性に悪影響を及ぼしてしまう問題がある。また、直径方向において融液の対流速度に影響を受けるので、界面の各点での組成も異なり、その結果、ウェハ面内の表面弾性波速度もばらついてしまう。

さらに、化学量論的組成等の従来用いられている組成でランガサイト単結晶を育成すると、一致熔融組成（調和融解組成、コングルエント組成）からのずれにより、基板面内および育成結晶の上部や下部において組成のずれが生じてしまう。その結果、結晶には二次相と欠陥が出やすく、結晶が割れやすくなり、ずれが大きい場合にはインクルージョンの混入が見られる。また、二次相の発生を抑制するために成長速度をかなり低い値にしなければならず、生産効率が悪くなってしまう問題があった。さらに、ランガサイト単結晶を構成する原子のうち、Gaは揮発し易い性質を有するため、組成によっては高い揮発性のために安定した引上成長が難しいという不都合があった。

結晶組成のずれは、SAWフィルタの特性に大きな影響を及ぼし、特に弾性表面波の伝搬速度が材料の密度に依存するため、結晶の上部から下部までの組成変化の結果、結晶の密度は変化し、結晶の上部から下部にわたって切り出した基板の上記伝搬速度も変化してしまう。SAWフィルタの重要な特性の一つである中心周波数は上記伝搬速度と素子の励振電極の寸法とにより決まるので、このような基板を用いて同じ励振電極設計で作製したSAWフィルタは、伝搬速度バラツキ及び中心周波数バラツキが大きく、実用できないものであった。

一方、一致熔融組成から大きくずれた組成を用いた育成では、成長界面において融液の各成分の実効分配係数が融液の対流速度に影響を受けるので、界面の各点での組成も異なり、その結果、基板面内の弾性表面波速度（伝搬速度）もばらついてしまっていた。したがって、結晶全体に組成の均一な結晶を得る必要があるが、化学量論比の組成に基づいた原料ペレットを使用した従来の技術では、均一なランガサイト結晶を得ることが困難であった。

発明の開示

本発明は、以上のような点を考慮してなされたもので、構成成分含有量の優れ

た均一性を得ること、また成長縞が生じ難く、バラツキの少ない表面弾性波伝搬速度を得ること、また二次相が発生し難く、さらにGaの揮発性の影響を少なくすること、また結晶中の欠陥等が少ないとともに、バラツキの少ない伝搬速度を得ることができるランガサイト単結晶インゴット、圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイスを提供することを目的とする。

そこで、本発明者らは、上述のような観点から、インゴット全体に亘って構成成分含有量にバラツキのないランガサイト単結晶インゴットを開発すべく研究を行った結果、

(1) ランガサイト単結晶インゴットにおける構成成分含有量のバラツキは、単結晶インゴットの引上げ育成中に構成成分である特にGa₂O₃が蒸発し、この結果インゴット引上げ育成進行にしたがって、るつぼ内の融液のGa₂O₃含有量が漸次減少することに起因し、この場合La₂O₃およびSiO₂はインゴット育成中実質的に蒸発することはないが、るつぼ内の融液中のGa₂O₃の経時的蒸発減少によって実質的にインゴット育成開始時の含有割合に比して経時的に漸次大きな含有割合となるものであり、このバラツキはインゴットが大径化すればするほど大きなものとなり、例えば直径：100mmの大径インゴットの場合、インゴット全体に亘ってのGa₂O₃含有量のバラツキは目標含有量に対して±0.5重量%以上の広範囲にわたること。

(2) 単結晶インゴットの引上げ育成中、るつぼ内の融液と育成インゴットの重量をそれぞれ連続的または断続的に測定し、この測定結果の含量をインゴット育成開始前のるつぼ内の融液の重量から差引いた残量をGa₂O₃の蒸発消失分と見なし、この蒸発消失分のGa₂O₃をるつぼの融液表面から融液に補給しながら単結晶インゴットの育成を行う、すなわちが補給されつつあるるつぼ内の融液の重量と引上げ育成中のインゴットの重量の和が引上げ育成開始前のるつぼ内の融液の重量と常に同一となるように制御しながらインゴット育成を行うと、育成後の単結晶インゴットにおけるGa₂O₃含有量の局部的バラツキがなくなり、このことはLa₂O₃およびSiO₂含有量にも変化がないことを示し、全体に亘って構成成分含有量の均一な単結晶インゴットとなり、この場合例えば直径：100mm以上の大

径インゴットであっても前記構成成分含有量のパラツキはインゴット直胴部の縦断面および横断面における測定で、いずれの測定個所でも目標含有量に対して重量割合による測定で±0.05重量%の範囲内のきわめて小さなものとなること

以上(1)および(2)に示される研究結果を得たのである。

この発明は、上記の研究結果に基づいてなされたものであって、本発明の構成成分含有量の均一性にすぐれたランガサイト単結晶インゴットは、組成式： $\text{La}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{SiO}_4$ で表わされるランガサイトの引上げ育成ランガサイト単結晶インゴットにおいて、インゴットの肩部を除いた直胴部の縦断面および横断面における構成成分である酸化ランタン、酸化ガリウム、および酸化シリコンの重量割合による含有量が、いずれの測定個所でも目標含有量に対して±0.05重量%の範囲内にあることを特徴とする。

また、本発明者らは、ランガサイト単結晶の製造技術について研究を行ってきた結果、成長縞がほとんど存在しない組成条件を見出すことができた。したがって、本発明は、この知見に基づいた技術であり、前記課題を解決するために以下の構成を採用する。

すなわち、本発明の圧電デバイス用基板の製造方法は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットを育成して圧電デバイス用基板に加工する圧電デバイス用基板の製造方法であって、

添付図面6に示す点A (La_2O_3 が47.81重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.69重量%)、点B (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.26重量%、 SiO_2 が5.77重量%)、点C (La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{SiO}_4$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

添付図面6に示す点A (La_2O_3 が47.81重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.69重量%)、点B (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.26重量%、 SiO_2 が5.77重量%)、点C (La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{SiO}_4$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする。

La_2O_3 が46.26重量%、 SiO_2 が5.77重量%)、点C (La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、添付図面6に示す点a (La_2O_3 が47.82重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.68重量%)、点b (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.27重量%、 SiO_2 が5.76重量%)、点c (La_2O_3 が48.03重量%、 Ga_2O_3 が46.49重量%、 SiO_2 が5.48重量%)で囲まれる組成範囲内の単結晶であることを特徴とする。

これらの圧電デバイス用基板の製造方法及び圧電デバイス用基板では、後述する実験結果に基づいて、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を上記範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 が上記組成範囲内の単結晶であるので、成長縞の発生が極めて少ない高品質な $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ 単結晶が得られるとともに、パラツキの少ない表面弾性波伝搬速度及び均一な中心周波数を有する基板が得られる。

また、本発明者らは、研究を行ってきた結果、二次相がほとんど存在しない組成条件を見出すことができた。さらには、Gaの揮発性の影響が少なく、安定した成長が可能な組成条件を見出すことができた。したがって、本発明は、この知見に基づいた技術であり、前記課題を解決するために以下の構成を採用した。

すなわち、本発明の圧電デバイス用基板の製造方法は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットを育成して圧電デバイス用基板に加工する圧電デバイス用基板の製造方法であって、添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする。

が4.00重量%)、点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)、点F (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.50重量%)、点G (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.02重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)、点F (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.50重量%)、点G (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.02重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、添付図面14に示す点a (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、点b (La_2O_3 が48.48重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.20重量%)、点c (La_2O_3 が48.49重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.02重量%)、点d (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.99重量%)、点e (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.16重量%)、点f (La_2O_3 が47.51重量%、 Ga_2O_3 が

46.01重量%、 SiO_2 が6.48重量%)、点g (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.02重量%、 SiO_2 が6.00重量%)で囲まれる組成範囲内の単結晶であることを特徴とする。

これらの圧電デバイス用基板の製造方法及び圧電デバイス用基板では、後述する実験結果に基づいて、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を上記範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 が上記組成範囲内の単結晶であるので、二次相の発生が極めて少ない高品質な $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ 単結晶が得られるとともに、バラツキの少ない表面弾性波伝搬速度及び均一な中心周波数を有する基板が得られる。

さらに、本発明の圧電デバイス用基板の製造方法は、上記本発明の圧電デバイス用基板の製造方法において、添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することが好ましい。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明の圧電デバイス用基板において、添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融

解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることが好ましい。

また、本発明の圧電デバイス用基板の製造方法は、上記本発明の圧電デバイス用基板において、前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、添付図面14に示す点a (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、点b (La_2O_3 が48.48重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.20重量%)、点c (La_2O_3 が48.49重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.02重量%)、点d (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.99重量%)、点e (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.16重量%)で囲まれる組成範囲内の単結晶であることが好ましい。

これらの圧電デバイス用基板の製造方法及び圧電デバイス用基板では、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲をさらに上記範囲内に限定秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 が上記組成範囲内に限定した単結晶であるので、二次相の発生を抑制するだけでなく、 Ga_2O_3 の高い組成比により、Gaの揮発性による成長への影響を極力低減することができる。

本発明者らは、ランガサイト単結晶の製造技術について研究を行ってきた結果、結晶中の欠陥やインクルージョンがほとんど存在しない組成条件を見出すことができた。したがって、本発明は、この知見に基づいた技術であり、前記課題を解決するために以下の構成を採用した。

すなわち、本発明の圧電デバイス用基板の製造方法は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットを育成して圧電デバイス用基板に加工する圧電デバイス用基板の製造方法であって、 La_2O_3 を、48.06から48.80重量%とし、 Ga_2O_3 を、45.25から46.60重量%とし、 SiO_2 を、5.21から6.19重量%とした組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は

、 La_2O_3 を、48.06から48.80重量%とし、 Ga_2O_3 を、45.25から46.60重量%とし、 SiO_2 を、5.21から6.19重量%とした組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする。

また、本発明の圧電デバイス用基板は、上記本発明のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、 La_2O_3 が48.06から48.80重量%であり、 Ga_2O_3 が45.25から46.60重量%であるとともに、 SiO_2 が5.21から6.19重量%である組成範囲内の単結晶であることを特徴とする。

これらの圧電デバイス用基板の製造方法及び圧電デバイス用基板では、後述する実験結果に基づいて、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を上記範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 が上記組成範囲内の単結晶であるので、結晶中の欠陥及びインクルージョンが極めて少ない高品質な $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ 単結晶が得られるとともに、バラツキの少ない伝搬速度及び均一な中心周波数を有する基板が得られる。

さらに、本発明の圧電デバイス用基板は、デバイスが利用する表面上の一定方向に表面弾性波が伝搬したときの伝搬速度のバラツキが100ppm以下にあることが好ましい。

この圧電デバイス用基板では、上記伝搬速度のバラツキが100ppm以下にあるので、SAWフィルタ特性の均一性を向上させることができる。

本発明の表面弾性波デバイスは、上記本発明の圧電デバイス基板の表面上に表面弾性波を送受信する電極を形成したことを特徴とする。

この表面弾性波デバイスでは、上記本発明の圧電デバイス基板を用いることで、高品質で特性のバラツキが少ないとともに高い信頼性を得ることができる。

図面の簡単な説明

図1は、高周波加熱単結晶育成炉の概略縦断面図である。

図 2 は、インゴット直胴部の長さ方向中心線を含む縦断面における構成成分含有量の測定個所を示す図である。

図 3 は、インゴット直胴部の長さ方向上部および下部の横断面における構成成分含有量の測定個所を示す図である。

図 4 は、図 2 に示す個所の La_2O_3 、 Ga_2O_3 、および SiO_2 の含有量を測定し、それぞれの測定結果と目標含有量との比較において、構成成分含有量のインゴットにおける均一性を評価した結果を示す図表である。

図 5 は、図 3 に示す個所の La_2O_3 、 Ga_2O_3 、および SiO_2 の含有量を測定し、それぞれの測定結果と目標含有量との比較において、構成成分含有量のインゴットにおける均一性を評価した結果を示す図表である。

図 6 は、第 2 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、組成を変えて育成した各ランガサイト単結晶の組成表示及び成長縞との発生の有無を示す状態図である。

図 7 は、第 2 の実施形態における圧電デバイス基板の製造方法において、CZ 法による引き上げ育成を示す概略的な断面図である。

図 8 は、第 2 の実施形態の表面弾性波デバイスを示す斜視図である。

図 9 は、第 2 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、結晶の長さ方向における測定個所を示す単結晶の概略的な正面図である。

図 10 は、第 2 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、結晶の長さ方向における測定個所に対する各原料の含有量を示すグラフである。

図 11 は、第 2 の実施形態における表面弾性波デバイスにおいて、SAW フィルタの SAW 音速の基板面内バラツキを示すグラフである。

図 12 は、第 2 の実施形態において、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成を変えて圧電デバイス基板を製造し、これらの基板における成長縞の発生の有無を調べた実験データを示す図表である。

図 13 は、第 2 の実施形態において、ランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成を分析した結果を示す図表である。

図 14 は、第 3 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法にお

いて、組成を変えて育成した各ランガサイト単結晶の組成表示及び二次相の発生の有無を示す状態図である。

図 1 5 は、第 3 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、結晶の長さ方向における測定個所に対する各原料の含有量を示すグラフである。

図 1 6 は、従来例における圧電デバイス基板及びその製造方法において、結晶の長さ方向における測定個所に対する各原料の含有量を示すグラフである。

図 1 7 は、第 3 の実施形態における表面弾性波デバイスにおいて、SAWフィルタのSAW音速の基板面内バラツキを示すグラフである。

図 1 8 は、第 3 の実施形態において、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成を変えて圧電デバイス基板を製造し、これらの基板における二次相の発生の有無を調べた実験データを示す図表である。

図 1 9 は、第 3 の実施形態において、ランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成を分析した結果を示す図表である。

図 2 0 は、従来例において、ランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成を分析した結果を示す図表である。

図 2 1 は、第 4 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、組成を変えて育成した各ランガサイト単結晶の組成表示及びクラックとインクルージョンとの発生の有無を示す状態図である。

図 2 2 は、第 4 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、結晶の長さ方向における測定個所に対する各原料の含有量を示すグラフである。

図 2 3 a は、第 4 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、結晶の長さ方向における測定用基板の切り出し位置を示す単結晶の正面図である。

図 2 3 b は、第 4 の実施形態における圧電デバイス基板及びその製造方法において、基板上面内の測定位置を示す基板の平面図である。

図 2 4 は、第 4 の実施形態における弾性表面波デバイスにおいて、SAWフィルタのSAW音速の基板面内バラツキを示すグラフである。

図25は、従来例における弾性表面波デバイスにおいて、SAWフィルタのSAW音速の基板面内バラツキを示すグラフである。

図26は、第4の実施形態において、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成を変えて圧電デバイス基板を製造し、これらの基板におけるクラック（欠陥）及びインクルージョンの発生の有無を調べた実験データを示す図表である。

図27は、第4の実施形態において、ランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成を分析した結果を示す図表である。

図28は、第4の実施形態において、ランガサイト単結晶の上部（ウェハ1）、中部（ウェハ2）、下部（ウェハ3）における基板面内（結晶横方向）各点（a, b, c, d）の組成を蛍光X線分析で分析した結果を示す図表である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の構成成分含有量の均一性にすぐれたランガサイト単結晶インゴット、圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイスの実施の形態を、図1ないし図5を参照して説明する。

〔第1の実施の形態〕

本発明のランガサイト単結晶インゴットを実施例により具体的に説明する。

原料粉末として、いずれも純度：99.99重量%以上の La_2O_3 粉末、 Ga_2O_3 粉末、および SiO_2 粉末を用意し、これら原料粉末を、重量割合で、

La_2O_3 ：48%、

Ga_2O_3 ：46%、

SiO_2 ：6%、

の目標組成に配合し、振動攪拌機で1時間混合し、 $0.01\text{ton}/\text{cm}^2$ の圧力で外径：100mm×厚さ：60mmの寸法をもったペレットにプレス成形し、このペレットを電気炉にて1200℃の温度に1時間保持の条件で焼成し、ついでこの焼成ペレットを図1に概略縦断面図で示される高周波加熱単結晶育成炉の直径：15cmのイリジウム製のつぼ内に装入し、これを前記のつぼの外周に沿ってアルミナおよびジルコニア断熱材を介して配置した高周波加熱コイルにて融解して融液とし、この状態で引上げ軸の先端部に取り付けたランガサイト種結晶

を前記るつぼ内の融液表面に当接し、前記引上げ軸を所定の速度で回転させながら、所定の速度で引き上げて単結晶インゴットの育成を開始し、一方インゴット育成中の前記るつぼ内の融液および育成インゴットの重量を連続的または断続的にそれぞれ重量センサにて測定し、この場合前記融液と育成インゴットの測定重量の合計は、育成中、前記融液表面からの Ga_2O_3 の蒸発によってインゴット育成開始直前のるつぼ内の融液の重量、すなわち上記目標組成を有する融液重量に対して不足する状態になるが、この不足分を逐次前記融液表面上方にるつぼ上端部内側に沿って3本等間隔に懸吊配置した直径：1 cm×長さ：20 cmの Ga_2O_3 焼結棒を融液表面に浸漬して補給し、このようにるつぼ内の融液と育成インゴットの重量の合計が常に育成開始前のるつぼ内融液の重量と一致するように前記 Ga_2O_3 焼結棒によって Ga_2O_3 を補給しながらインゴット育成を行うことにより直胴部直径：100 mm×直胴部長さ：120 mmの寸法をもった大径の本発明ランガサイト単結晶インゴット（以下、本発明インゴットと云う）を製造した。

また、比較の目的で、インゴット育成中、上記 Ga_2O_3 焼結棒による融液表面への Ga_2O_3 の補給を行わない以外は同一の条件で同じく大径の従来ランガサイト単結晶インゴット（以下、従来インゴットと云う）を製造した。

この結果得られた本発明インゴットおよび従来インゴットの肩部を切除した直胴部について、長さ方向中心線を含む任意縦断面、並びに長さ方向上部および下部の任意横断面の図2、図3に示される個所の La_2O_3 、 Ga_2O_3 、および SiO_2 の含有量を測定し、それぞれの測定結果と上記の目標含有量との比較において、前記構成成分含有量のインゴットにおける均一性を評価した。この測定結果を図4及び図5に示す図表に示した。

[第2の実施の形態]

次に、本発明に係る第2の実施形態を、図6から図13を参照しながら説明する。

本実施形態の圧電デバイス基板及び表面弾性波デバイスを製造するには、まず、図6に示す組成範囲、すなわち、

図6に示す点A（ La_2O_3 が47.81重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.69重量%）、

点B (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.26重量%、 SiO_2 が5.77重量%)、

点C (La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で原料を秤量する。

次に、これらの原料を振動攪拌機で1時間混合させ、外径100mm×60mmの寸法をもったペレットに成形する。次に、ペレットを電気炉で1200℃の温度で、1時間空气中で焼成する。

結晶の育成は、高周波加熱育成炉において、図7に示すように、イリジウム製のルツボ1を用いて行い。該ルツボ1の外側と上方にアルミナ及びジルコニアの断熱材2を設け、ホットゾーンを形成する。断熱材2の外側には、加熱用の高周波ワークコイル3を設置する。なお、ルツボ1底部には、熱電対4が設置されている。

育成の際に、ルツボ1の中に焼成されたペレットをチャージし、加熱、融解させて所定温度の融液Lとする。そして、ランガサイト ($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$) の種結晶Sを引き上げ軸5に固定し、所定の回転数と引上速度で融液Lからランガサイト単結晶Cを育成する。自動直径制御は、引き上げ軸5につながる重量センサ6で検出した結晶の重量変化信号により行う。

このようにして育成したランガサイト単結晶C (直径85cmで胴部の長さが190cm) は、秤量時の組成範囲と同様の組成範囲内の単結晶となる。すなわち、上記組成範囲の秤量で育成した単結晶は、図6に示す点Aの組成では点a (La_2O_3 が47.82重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.68重量%) の組成となり、点Bの組成では点b (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.27重量%、 SiO_2 が5.76重量%) となり、点Cの組成では点c (La_2O_3 が48.03重量%、 Ga_2O_3 が46.49重量%、 SiO_2 が5.48重量%) の組成となった。したがって、この単結晶は、図6に示す点a～cで囲まれる組成範囲内の単結晶である。

次に、このランガサイト単結晶Cは、スライスされて圧電デバイス用基板に加工される。さらに、この圧電デバイス用基板には、図8に示すように、その表面に励振電極 (すだれ電極 (櫛歯電極)) 7が形成されてSAWフィルタ (表面弾

性波デバイス) 8 が作製される。

なお、上記圧電デバイス用基板は、表面弾性波音速（表面上を表面弾性波が伝搬したとき、すなわちデバイスが利用する一定方向（励振電極3の対向方向）に伝搬したときの伝搬速度）のバラツキが100ppm以下となっている。

「第2の実施形態の実施例」

次に、本実施形態の圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイスを、実施例により図6、図9から図13を参照して具体的に説明する。

上記製造方法において、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成を変えて圧電デバイス基板を製造し、これらの基板における成長縞の発生の有無を調べた実験データを、以下の図12及び図6に示す。なお、図6中のマークは、成長縞が発生した場合は◆、発生しない場合は◇としている。なお、二次相は各実験サンプル（AからC、①から⑤）では発生しなかった。また、図6中のX点は、従来の化学量論的組成（ La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.06重量%、 SiO_2 が5.91重量%）に基づいて育成した単結晶の場合であり、Y点は、上述したJ. Crystal Growth掲載の論文で記載されている組成（ La_2O_3 が47.99重量%、 Ga_2O_3 が46.30重量%、 SiO_2 が5.71重量%）に基づいて育成した単結晶の場合である。なお、上記点AからCで囲まれた組成範囲内にある点Dの組成（ La_2O_3 が47.94重量%、 Ga_2O_3 が46.42重量%、 SiO_2 が5.64重量%の組成）についても、同様にランガサイト単結晶を確認的に育成した。この点Dの組成で成長した単結晶は点d（ La_2O_3 が47.94重量%、 Ga_2O_3 が46.43重量%、 SiO_2 が5.63重量%）の組成となった。

図12及び図6に示すように、上述した組成範囲内の組成で製造した試料番号AからDまでは、成長縞が発生しておらず良質な結晶が得られているのに対し、上記組成範囲外の試料（試料番号①から⑤及びX、Y）については、成長縞が発生してしまっていることがわかる。

また、上記組成範囲のうち、 La_2O_3 が47.93重量%、 Ga_2O_3 が46.45重量%、 SiO_2 が5.62重量%の組成で原料を秤量し、ペレットを作製してルツボ1中にチャージし、直径85cm直胴部の長さ190cmのランガサイ

ト単結晶Cを育成した。そして、このランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成をICP分析（Inductive Coupled Plasma:誘導結合プラズマ）で分析した。その結果、図13及び図9、10に示すように、各成分の含有量は、投入組成の±0.02%以内の誤差で一致した。したがって、上部、中部、下部を通して均一性の良い結晶が得られたことが判明した。さらに、このランガサイト単結晶は、二次相も発生しなかった。

次に、上記実施例のランガサイト単結晶から50度回転Y軸のウェハを作製した。このウェハ面内の表面弾性波音速（伝搬速度）のバラツキを調べるために、スパッタによってアルミ電極の励振電極7を形成し、上記実施形態のSAWフィルタ8を作製した。そして、ネットアナライザを用いてSAWフィルタ8の中心周波数 f_0 を測定した。この測定では、SAWフィルタの入力端子に交流信号をかけ、出力端子から出力信号を測定し、周波数走査によってフィルタの出力信号と入力信号の相对振幅の周波数特性を得た。

なお、中心周波数 f_0 は、この周波数特性のピーク値から通過損失が-10dBになる通過帯域中心点の周波数である。ここで、表面弾性波音速 v は、 $v = f_0 \cdot 2d$ という関係式によって求めることができる。なお、 $2d$ はSAWフィルタ8の励振電極（すだれ電極）7の周期であり、その寸法の精度は電子顕微鏡で確認されている。こうすることによって、SAWフィルタの中心周波数から表面弾性波音速を求め、表面弾性波音速の基板面内バラツキを調べることができる。

さらに、結晶の上部、中部、下部からの基板の総合的なバラツキも調べた。その結果、図11に示すように、表面弾性波音速のバラツキが100ppm以下であり、結晶の組成の均一性によるSAWフィルタの特性均一性の向上が判明された。

なお、結晶の組成変化が表面弾性波音速のバラツキに与える影響を調べるために、比較例として化学量論比組成に基づいて育成した従来例の結晶を実施例と同様に、圧電デバイス用基板に加工し、SAWフィルタを作製した。なお、この実験では、結晶上部の透明部しか使わなかった。このSAWフィルタの中心周波数を測定すると、結晶の育成方向の表面弾性波音速バラツキは400ppmであり、弾性波素子としてバラツキが大きすぎる結果となった。

すなわち、本実施形態では、ランガサイトの原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を上記範囲内で秤量してルツボ 1 内で融解させ、該ルツボ内からランガサイト単結晶 C を引き上げ育成するので、成長縞の発生が極めて少なく長さ方向及び横方向（ウェハ面内）の組成の均一な高品質ランガサイト単結晶が得られるとともに、均一な伝搬速度を有する基板が得られる。そして、表面弾性波音速バラツキが 100 ppm 以下の圧電デバイス用基板が得られることから、該基板を用いることにより、SAW フィルタ特性の均一性が向上して、高品質なデバイスを高歩留まりで得ることができる。

〔第 3 の実施の形態〕

次に、本発明に係る圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイスの第 3 の実施形態を、図 14 から図 20 を参照しながら説明する。

本実施形態の圧電デバイス基板及び表面弾性波デバイスを製造するには、まず、図 14 に示す第 1 の組成範囲、すなわち、

図 14 に示す点 A (La_2O_3 が 47.98 重量%、 Ga_2O_3 が 46.32 重量%、 SiO_2 が 5.70 重量%)、

点 B (La_2O_3 が 48.50 重量%、 Ga_2O_3 が 46.32 重量%、 SiO_2 が 5.18 重量%)、

点 C (La_2O_3 が 48.50 重量%、 Ga_2O_3 が 47.50 重量%、 SiO_2 が 4.00 重量%)、

点 D (La_2O_3 が 47.50 重量%、 Ga_2O_3 が 47.50 重量%、 SiO_2 が 5.00 重量%)、

点 E (La_2O_3 が 47.50 重量%、 Ga_2O_3 が 46.32 重量%、 SiO_2 が 6.18 重量%)、

点 F (La_2O_3 が 47.50 重量%、 Ga_2O_3 が 46.00 重量%、 SiO_2 が 6.50 重量%)、

点 G (La_2O_3 が 47.98 重量%、 Ga_2O_3 が 46.00 重量%、 SiO_2 が 6.02 重量%) で囲まれる組成範囲内で原料を秤量する。

なお、この組成範囲は、 La_2O_3 が 47.50 重量% から 48.50 重量% ま

でとし、 Ga_2O_3 が46.00重量%から47.50重量%までとし、 SiO_2 が4.00重量%から6.50重量%までとした組成範囲内から、 La_2O_3 が47.98重量%を越えていると共に Ga_2O_3 が46.32重量%未満の組成範囲を除いた組成範囲である。

次に、第2の実施形態と同様にしてペレットを作製及びランガサイト単結晶を育成する。

このようにして育成したランガサイト単結晶（直径85cmで直胴部の長さが190cm）は、秤量時の組成範囲と同様の組成範囲内の単結晶となる。すなわち、上記組成範囲の秤量で育成した単結晶は、図14に示す点Aの組成では点a（ La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%）の組成となり、点Bの組成では点b（ La_2O_3 が48.48重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.20重量%）となり、点Cの組成では点c（ La_2O_3 が48.49重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.02重量%）となり、点Dの組成では点d（ La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.99重量%）となり、点Eの組成では点e（ La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.16重量%）となり、点Fの組成では点f（ La_2O_3 が47.51重量%、 Ga_2O_3 が46.01重量%、 SiO_2 が6.48重量%）となり、点Gの組成では点g（ La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.02重量%、 SiO_2 が6.00重量%）の組成となった。したがって、この単結晶は、図14に示す点a～gで囲まれる組成範囲内の単結晶である。これらの組成範囲内におけるランガサイト単結晶には、二次相がほとんど発生していない。

次に、このランガサイト単結晶から、第2の実施形態と同様にして、SAWフィルタ（表面弾性波デバイス）が作製される。

なお、上記圧電デバイス用基板は、表面弾性波音速（表面上を表面弾性波が伝搬したとき、すなわちデバイスが利用する一定方向（励振電極3の対向方向）に伝搬したときの伝搬速度）のバラツキが100ppm以下となっている。

「第3の実施形態の実施例」

次に、本実施形態の圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及

びこれを用いた表面弾性波デバイスを、実施例により図14、図4から図20を参照して具体的に説明する。

上記製造方法において、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成を変えて圧電デバイス基板を製造し、これらの基板における二次相の発生の有無を調べた実験データを、以下の図18及び図14に示す。なお、図14中のマークは、二次相が発生した場合は■、発生しない場合は□としている。また、図14中のX点は、従来の化学量論的組成（ La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.06重量%、 SiO_2 が5.91重量%）に基づいて育成した単結晶の場合であり、Y点は、上述したJ. Crystal Growth掲載の論文で記載されている組成（ La_2O_3 が47.99重量%、 Ga_2O_3 が46.30重量%、 SiO_2 が5.71重量%）に基づいて育成した単結晶の場合である。

図18及び図14に示すように、上述した組成範囲内の組成で製造した試料番号AからGまでは、二次相が発生しておらず良質な結晶が得られているのに対し、上記組成範囲外の試料（試料番号HからM）については、二次相が発生してしまっていることがわかる。

また、上記組成範囲のうち、 La_2O_3 が47.93重量%、 Ga_2O_3 が46.66重量%、 SiO_2 が5.41重量%の組成で原料を秤量し、ペレットを作製してルツボ1中にチャージし、直径85cm直胴部の長さ190cmのランガサイト単結晶Cを育成した。そして、このランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成をICP分析（Inductive Coupled Plasma:誘導結合プラズマ）で分析した。その結果、図19及び図9、15に示すように、各成分の含有量は、投入組成の±0.02%以内の誤差で一致した。したがって、上部、中部、下部を通して均一性の良い結晶が得られたことが判明した。さらに、このランガサイト単結晶は、二次相も発生しなかった。

なお、比較例として、図20及び図16に示すように、原料を従来の化学量論比組成に基づいて秤量し、上記実施例と同様に、結晶を育成した。なお、この結晶の上部（肩部）の形成段階において二次相が発生した。また、この結晶の上部は透明であったが、下部にはインクルージョンが発生し、透明度は悪かった。そして、結晶上部から下部にかけて組成の変動が目標含有量の±0.5%であった

。この結晶の下部は、弾性波素子として使用できないものであった。

次に、上記実施例のランガサイト単結晶から50度回転Y軸のウェハを作製した。このウェハ面内の表面弾性波音速（伝搬速度）のバラツキを調べるために、第2の実施形態と同様に、上記実施形態のSAWフィルタを作製し、ネットアナライザを用いてSAWフィルタの中心周波数 f_c を測定した。

さらに、結晶の上部、中部、下部からの基板の総合的なバラツキも調べた。その結果、図17に示すように、表面弾性波音速のバラツキが100ppm以下であり、結晶の組成の均一性によるSAWフィルタの特性均一性の向上が判明された。

すなわち、本実施形態では、ランガサイトの原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を上記範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内からランガサイト単結晶を引き上げ育成するので、二次相の発生が極めて少なく長さ方向及び横方向（ウェハ面内）の組成の均一な高品質ランガサイト単結晶が得られるとともに、均一な伝搬速度を有する基板が得られる。そして、表面弾性波音速バラツキが100ppm以下の圧電デバイス用基板が得られることから、該基板を用いることにより、SAWフィルタ特性の均一性が向上して、高品質なデバイスを高歩留まりで得ることができる。

なお、Gaの揮発性を考慮した場合において、圧電デバイス基板及び表面弾性波デバイスを製造するには、図14に示す第2の組成範囲、すなわち、

図14に示す点A（ La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%）、

点B（ La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%）、

点C（ La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%）、

点D（ La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%）、

点E（ La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%）で囲まれる組成範囲内で原料を秤量する。

このように、さらに組成範囲を限定した秤量によって上記と同様に引上成長を行うと共に、引き上げたランガサイト単結晶を圧電デバイス用基板に加工し、該圧電デバイス用基板に上記と同様にSAWデバイスを作製する。

すなわち、 Ga_2O_3 の組成比が46.32重量%よりも低いと、Gaの揮発による組成比の変化が無視できなくなり、引上成長に影響を与えるが、上記第2の組成範囲にさらに限定して Ga_2O_3 の組成比を高くすることにより、二次相の発生を抑制するだけでなく、Gaの揮発性による成長への影響がほとんど無くなり、安定した成長を行うことができる。このような圧電デバイス用基板では、より組成比のバラツキが少なくなり、この基板を用いたSAWデバイスでは、さらに安定した特性を得ることができる。

[第4の実施の形態]

次に、本発明に係る圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた弾性表面波デバイスの第4の実施形態を、図21から図28を参照しながら説明する。

本実施形態の圧電デバイス基板及び弾性表面波デバイスを製造するには、まず、 La_2O_3 を、48.06～48.80重量%とし、 Ga_2O_3 を、45.25～46.60重量%とし、 SiO_2 を、5.21～6.19重量%とした組成範囲内で原料を秤量する。

次に、第2の実施形態と同様にしてペレットを作製及びランガサイト単結晶を育成する。

このようにして育成したランガサイト単結晶は、秤量時の組成範囲と同様に、 La_2O_3 が48.06から48.80重量%であり、 Ga_2O_3 が45.25から46.60重量%であるとともに、 SiO_2 が5.21から6.19重量%である組成範囲内の単結晶となる。

次に、このランガサイト単結晶から、第2の実施形態と同様にして、SAWフィルタ（表面弾性波デバイス）が作製される。

なお、上記圧電デバイス用基板は、弾性表面波音速（表面上を弾性表面波が伝搬したとき、すなわちデバイスが利用する一定方向（励振電極3の対向方向）に伝搬したときの伝搬速度）のバラツキが100ppm以下となっている。

「第4の実施形態の実施例」

次に、本実施形態に係る圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた弾性表面波デバイスを、実施例により図21から図28を参照して具体的に説明する。

上記製造方法において、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成を変えて圧電デバイス基板を製造し、これらの基板におけるクラック（欠陥）及びインクルージョンの発生の有無を調べた実験データを、以下の図21及び図26に示す。なお、図21中のマークは、クラックが発生した場合は■、発生しない場合は□とし、またインクルージョンが発生した場合は◆、発生しない場合は◇としている。また、図21中のA点は、従来の化学量論的組成に基づいて育成した単結晶の場合であり、B点は、上述したJ. Crystal Growth掲載の論文で記載されている組成に基づいて育成した単結晶の場合である。

図21及び図26に示すように、上述した組成範囲内の組成で製造した試料番号①から⑧までは、クラック及びインクルージョンの両方とも発生しておらず良質な結晶が得られているのに対し、上記組成範囲外の試料については、クラック及びインクルージョンの少なくとも一方が発生してしまっていることがわかる。

また、上記組成範囲のうち、 La_2O_3 が48.25重量%、 Ga_2O_3 が46.02重量%、 SiO_2 が5.73重量%の組成で原料を秤量し、ペレットを作製してルツボ中にチャージし、直径85cm直胴部の長さ190cmのランガサイト単結晶を育成した。そして、このランガサイト単結晶の結晶長さ方向における組成を湿式化学分析で分析した。その結果、図9、図16、図22及び図27に示すように、各成分の含有量は、投入組成の±0.05%以内であった。

さらに、このランガサイト単結晶の上部（ウェハ1）、中部（ウェハ2）、下部（ウェハ3）における基板面内（結晶横方向）各点（a, b, c, d）の組成を蛍光X線分析で分析した。その結果、図23a、図23b及び図28に示すように、各成分の含有量は、この場合も投入組成の±0.05%以内であった。

このように、本発明に係る圧電デバイス用基板の製造方法では、上部、中部、下部を通して均一性の良いランガサイト単結晶が得られた。さらに、このランガサイト単結晶はクラックもインクルージョンの混入も無かった。

次に、上記ランガサイト単結晶をY 5 0面に沿ってスライス加工し、ラッピング、研磨により圧電デバイス基板に加工し、この基板面内の弾性表面波音速（伝搬速度）のバラツキを調べるために、第2の実施形態と同様に、上記実施形態のSAWフィルタを作製し、ネットアナライザを用いてSAWフィルタの中心周波数 f_0 を測定した。

さらに、結晶の上部、中部、下部からの基板の総合的なバラツキも調べた。その結果、図24に示すように、弾性表面波音速の平均値が 2740.36 m/s 、バラツキが 88.08 ppm であり 100 ppm 以下を実現でき、結晶の組成の均一性によるSAWフィルタの特性均一性を向上させることができた。

なお、比較例として化学量論比組成に基づいて育成した従来例の結晶から作製したSAWフィルタの中心周波数を測定すると、図25に示すように、基板面内の弾性表面波音速の平均値が 2740.21 m/s 、バラツキが 224.9 ppm であるとともに、結晶の育成方向の弾性表面波音速バラツキは 400 ppm であり、弾性波素子としてバラツキが大きすぎる結果となった。

すなわち、本実施形態では、ランガサイトの原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を上記範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内からランガサイト単結晶を引き上げ育成するので、結晶中の欠陥及びインクルージョンが極めて少ない高品質なランガサイト単結晶が得られるとともに、均一な伝搬速度を有する基板が得られる。そして、弾性表面波音速バラツキが 100 ppm 以下の圧電デバイス用基板が得られることから、該基板を用いることにより、SAWフィルタ特性の均一性が向上して、高品質なデバイスを高歩留まりで得ることができる。

産業上の利用可能性

本発明は、種結晶による引上げ育成初期に形成されたインゴット肩部を除いた残りのインゴット直胴部全体に亘って構成成分である酸化ランタン（以下、 La_2O_3 で示す）、酸化ガリウム（以下、 Ga_2O_3 で示す）、および酸化シリコン（以下、 SiO_2 で示す）の含有量のバラツキがきわめて小さい、構成成分含有量の均一

性にすぐれたランガサイト単結晶インゴットに関するものであり、また、SAWフィルタ等に好適な圧電デバイス用基板の製造方法と圧電デバイス用基板、及びこれを用いた表面弾性波デバイスに関する。

図4、図5に示される結果から、本発明インゴットは、インゴット全体に亘って構成成分である La_2O_3 、 Ga_2O_3 、および SiO_2 含有量のバラツキがきわめて小さく、その含有量はいずれの個所でも目標含有量に対してそれぞれ $\pm 0.05\%$ の範囲内にあり、均一性にすぐれたものであるのに対して、従来インゴットにおいては、前記構成成分含有量のインゴットにおける局部的変化がきわめて大きく、そのバラツキ範囲は $\pm 0.5\%$ の範囲にも及ぶことが明らかである。

上述のように、この発明のランガサイト単結晶インゴットは、構成成分含有量のインゴット全体に亘っての均一性にすぐれたものであるから、例えば弾性表面波フィルタなどの圧電デバイス用基板などへの適用に際しては、特性の安定化は勿論のこと、低コスト化にも寄与するなど工業上有用な特性を有するものである。

また、本発明によれば、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を第2の実施形態で記載した範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成範囲が第2の実施形態で記載した範囲内の単結晶であるので、成長縞の発生が極めて少ない高品質な $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ 単結晶が得られるとともに、均一な中心周波数及び伝搬速度を有する基板が得られる。すなわち、この結晶から切り出された圧電デバイス用基板は、機械的強度のバラツキがほとんどなく、研磨加工による凸凹が生じ難く、均一かつ優れたSAWフィルタ特性を得ることができる。また、表面弾性波伝搬速度のバラツキが大幅に減少し、弾性波素子性能のバラツキも十分に小さくすることができる。

また、本発明によれば、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を第3の実施形態で記載した範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 の組成範囲が第

3の実施形態で記載した範囲内の単結晶であるので、二次相の発生が極めて少ない高品質な $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ 単結晶が得られ、結晶が割れ難くなると共に、成長速度を低くする必要が無く、生産効率を維持することができる。また、均一な中心周波数及び伝搬速度を有する基板を得ることができる。すなわち、長さ方向及び横方向の組成の均一なランガサイト単結晶を育成でき、この結晶から切り出された圧電デバイス用基板は、その表面弾性波伝搬速度のバラツキが大幅に減少し、弾性波素子性能のバラツキも十分に小さくすることができる。

また、本発明によれば、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の原料である La_2O_3 、 Ga_2O_3 及び SiO_2 のそれぞれ組成範囲を第4の実施形態で記載した範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成し、また $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ が、 La_2O_3 が48.06から48.80重量%であり、 Ga_2O_3 が45.25から46.60重量%であるとともに、 SiO_2 が5.21から6.19重量%である組成範囲内の単結晶であるので、結晶中の欠陥及びインクルージョンが極めて少ない高品質な $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ 単結晶が得られるとともに、均一な中心周波数及び伝搬速度を有する基板が得られる。すなわち、長さ方向及び横方向（基板面内）の組成の均一なランガサイト単結晶を育成でき、この結晶から切り出された圧電デバイス用基板は、その弾性表面波伝搬速度のバラツキが大幅に減少し、弾性波素子性能のバラツキも十分に小さくすることができる。

請求の範囲

1. 組成式： $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ で表わされるランガサイトの引上げ育成ランガサイト単結晶インゴットにおいて、

インゴットの肩部を除いた直胴部の縦断面および横断面における構成成分である酸化ランタン、酸化ガリウム、および酸化シリコンの重量割合による含有量が、いずれの測定個所でも目標含有量に対して ± 0.05 重量%の範囲内にあることを特徴とする構成成分含有量の均一性にすぐれたランガサイト単結晶インゴット。

2. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットを育成して圧電デバイス用基板に加工する圧電デバイス用基板の製造方法であって、

添付図面6に示す点A (La_2O_3 が47.81重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.69重量%)、

点B (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.26重量%、 SiO_2 が5.77重量%)、

点C (La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする圧電デバイス用基板の製造方法。

3. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

添付図面6に示す点A (La_2O_3 が47.81重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.69重量%)、

点B (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.26重量%、 SiO_2 が5.77重量%)、

点C (La_2O_3 が48.04重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.46重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツ

ボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板

4. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、

添付図面6に示す点a (La_2O_3 が47.82重量%、 Ga_2O_3 が46.50重量%、 SiO_2 が5.68重量%)、

点b (La_2O_3 が47.97重量%、 Ga_2O_3 が46.27重量%、 SiO_2 が5.76重量%)、

点c (La_2O_3 が48.03重量%、 Ga_2O_3 が46.49重量%、 SiO_2 が5.48重量%)で囲まれる組成範囲内の単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

5. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットを育成して圧電デバイス用基板に加工する圧電デバイス用基板の製造方法であって、

添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、

点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、

点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、

点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、

点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)、

点F (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.50重量%)、

点G (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が

6. 0.2重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする圧電デバイス用基板の製造方法。

6. 請求の範囲第5項記載の圧電デバイス用基板の製造方法において、
添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、
点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、
点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、
点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、
点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする圧電デバイス用基板の製造方法。

7. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、
点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、
点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、
点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、
点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)

6. 18重量%)、

点F (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.50重量%)、

点G (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.00重量%、 SiO_2 が6.02重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

8. 請求の範囲第7項記載の圧電デバイス用基板において、

添付図面14に示す点A (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、

点B (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.18重量%)、

点C (La_2O_3 が48.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が4.00重量%)、

点D (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が47.50重量%、 SiO_2 が5.00重量%)、

点E (La_2O_3 が47.50重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.18重量%)で囲まれる組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

9. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、

添付図面14に示す点a (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、

点b (La_2O_3 が48.48重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.20重量%)、

点c (La_2O_3 が48.49重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.02重量%)、

点d (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.99重量%)、

点e (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.16重量%)、

点f (La_2O_3 が47.51重量%、 Ga_2O_3 が46.01重量%、 SiO_2 が6.48重量%)、

点g (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.02重量%、 SiO_2 が6.00重量%)で囲まれる組成範囲内の単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

10. 請求の範囲第9項記載の圧電デバイス用基板において、

前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、

添付図面14に示す点a (La_2O_3 が47.98重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.70重量%)、

点b (La_2O_3 が48.48重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が5.20重量%)、

点c (La_2O_3 が48.49重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.02重量%)、

点d (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が47.49重量%、 SiO_2 が4.99重量%)、

点e (La_2O_3 が47.52重量%、 Ga_2O_3 が46.32重量%、 SiO_2 が6.16重量%)で囲まれる組成範囲内の単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

11. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットを育成して圧電デバイス用基板に加工する圧電デバイス用基板の製造方法であって、

La_2O_3 を、48.06から48.80重量%とし、

Ga_2O_3 を、45.25から46.60重量%とし、
 SiO_2 を、5.21から6.19重量%とした組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ の単結晶を引き上げ育成することを特徴とする圧電デバイス用基板の製造方法。

12. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、 La_2O_3 を、48.06から48.80重量%とし、 Ga_2O_3 を、45.25から46.60重量%とし、 SiO_2 を、5.21から6.19重量%とした組成範囲内で秤量してルツボ内で融解させ、該ルツボ内から引き上げ育成された単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

13. 請求の範囲第1項記載のランガサイト単結晶インゴットから形成された圧電デバイス用基板であって、

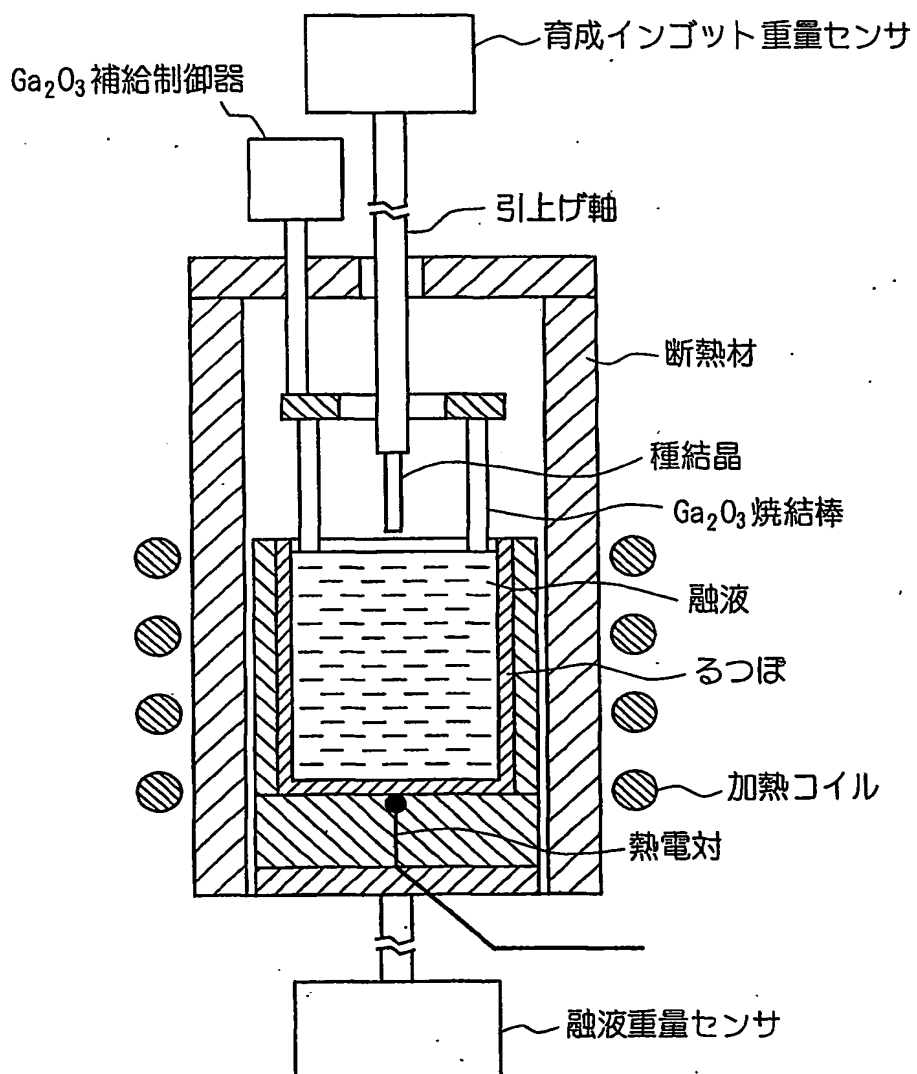
前記 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ は、 La_2O_3 が48.06から48.80重量%であり、 Ga_2O_3 が45.25から46.60重量%であるとともに、 SiO_2 が5.21から6.19重量%である組成範囲内の単結晶であることを特徴とする圧電デバイス用基板。

14. デバイスが利用する表面上の一定方向に表面弾性波が伝搬したときの伝搬速度のバラツキが100ppm以下にあることを特徴とする請求の範囲第3項、第4項、第7項、第8項、第9項、第10項、第12項又は第13項のいずれかに記載の圧電デバイス用基板。

15. 請求の範囲第3項、第4項、第7項、第8項、第9項、第10項、第12項又は第13項のいずれかに記載の圧電デバイス基板の表面上に表面弾性波を送受信する電極を形成したことを特徴とする表面弾性波デバイス。

1/23

図1



2/23

図2

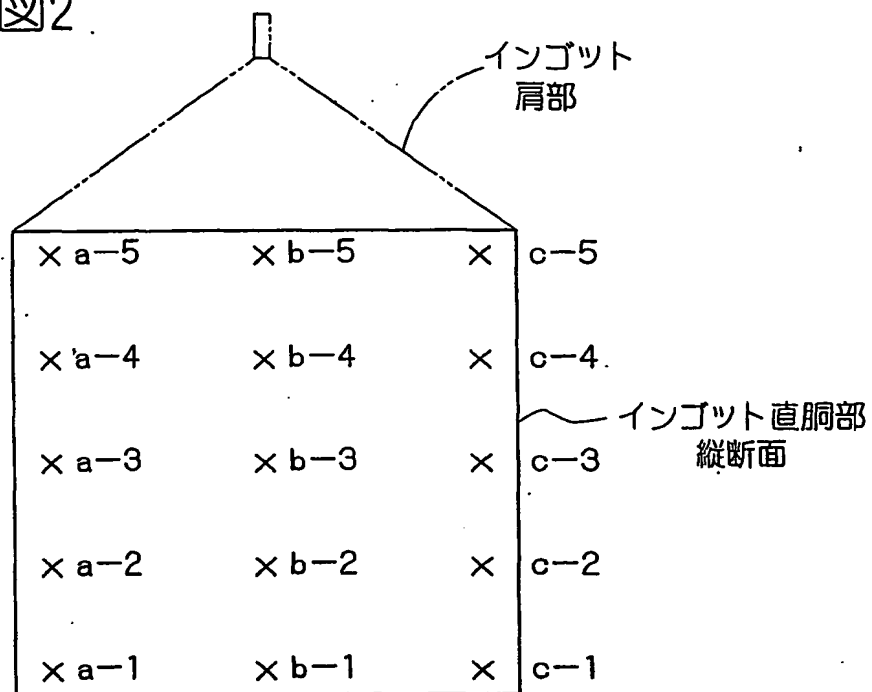
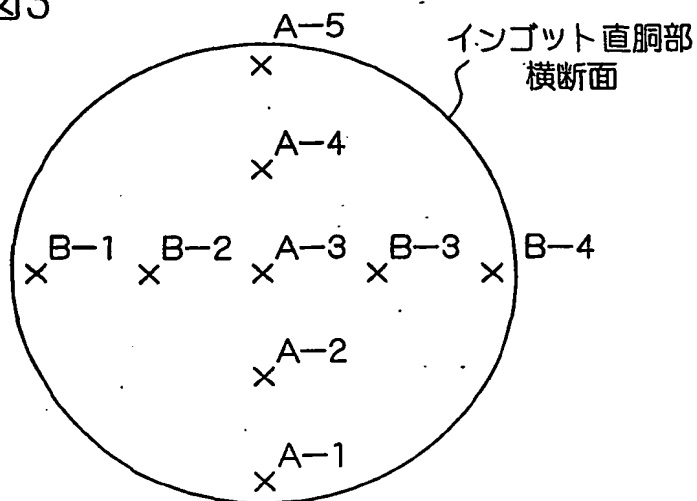


図3



𠂇

測定箇所 記号	含有量(重量%)			測定箇所 記号	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂		La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a-1	48.19	46.06	5.75	a-1	48.53	45.67	5.81
a-2	48.17	46.08	5.75	a-2	48.35	45.88	5.77
a-3	48.15	46.10	5.75	a-3	48.11	46.15	5.74
a-4	48.13	46.12	5.75	a-4	47.96	46.31	5.73
a-5	48.11	46.14	5.75	a-5	47.77	46.53	5.70
b-1	48.18	46.07	5.75	b-1	48.51	45.69	5.80
b-2	48.11	46.14	5.75	b-2	48.36	45.86	5.77
b-3	48.14	46.11	5.75	b-3	48.06	46.20	5.74
b-4	48.14	46.11	5.75	b-4	47.94	46.34	5.72
b-5	48.12	46.13	5.75	b-5	47.82	46.47	5.71
c-1	48.18	46.07	5.75	c-1	48.49	45.72	5.79
c-2	48.17	46.08	5.75	c-2	48.35	45.87	5.78
c-3	48.16	46.09	5.75	c-3	48.08	46.18	5.74
c-4	48.12	46.13	5.75	c-4	47.98	46.29	5.73
c-5	48.13	46.12	5.75	c-5	47.79	46.50	5.71
目標含有量	48.15	46.10	5.75	目標含有量	48.35	46.10	5.75
最大値	48.19	46.14	5.75	最大値	48.53	46.53	5.80
最小値	48.11	46.06	5.75	最小値	47.77	45.67	5.70

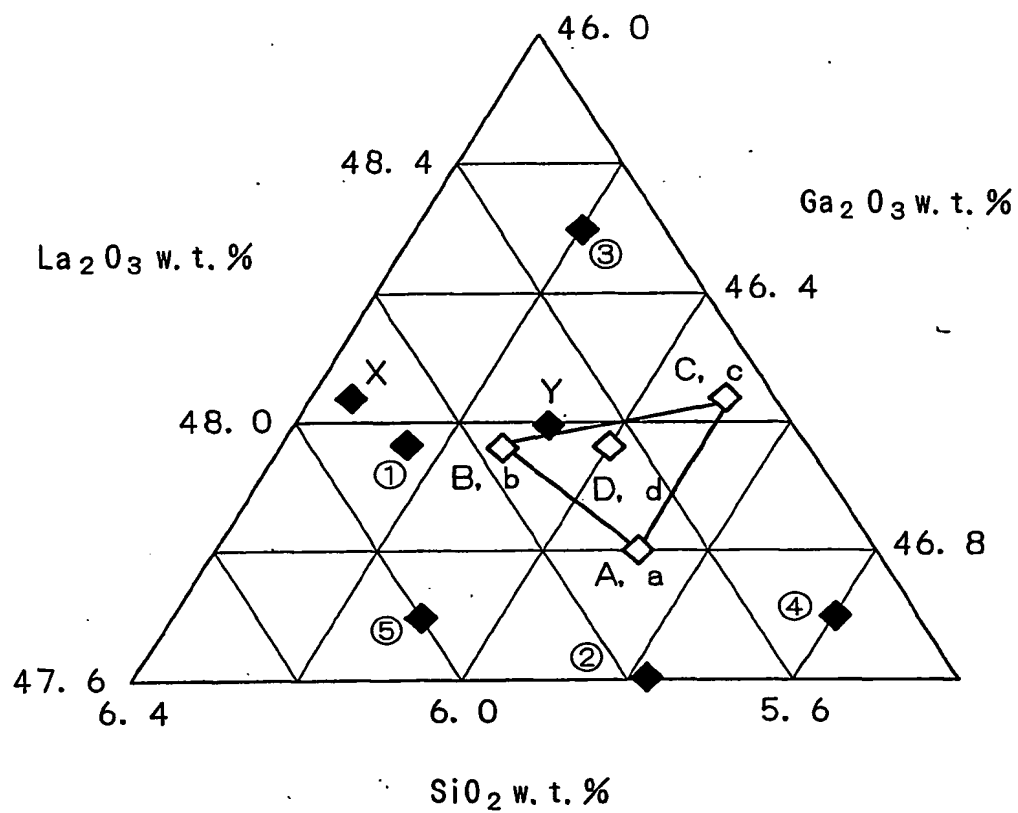
4/23

図5

測定箇所記号	含有量(重量%)			測定箇所記号	含有量(重量%)			
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂		La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂	
上 部	A-1	48.11	46.14	5.75	A-1	48.11	46.15	5.74
	A-2	48.10	46.15	5.75	A-2	48.05	46.21	5.74
	A-3	48.12	46.13	5.75	A-3	47.82	46.47	5.71
	A-4	48.10	46.15	5.75	A-4	48.04	46.22	5.74
	A-5	48.11	46.14	5.75	A-5	48.13	46.12	5.75
	B-1	48.13	46.12	5.75	B-1	48.05	46.21	5.74
	B-2	48.10	46.15	5.75	B-2	48.04	46.22	5.74
	B-3	48.12	46.13	5.75	B-3	48.12	46.13	5.75
	B-4	48.11	46.14	5.75	B-4	48.13	46.13	5.74
	A-1	48.15	46.10	5.75	A-1	48.52	45.68	5.79
下 部	A-2	48.17	46.08	5.75	A-2	48.53	45.67	5.80
	A-3	48.18	46.07	5.75	A-3	48.51	45.69	5.80
	A-4	48.15	46.10	5.75	A-4	48.53	45.66	5.81
	A-5	48.16	46.09	5.75	A-5	48.55	45.65	5.80
	B-1	48.14	46.11	5.75	B-1	48.56	45.64	5.80
	B-2	48.18	46.07	5.75	B-2	48.53	45.68	5.79
	B-3	48.15	46.10	5.75	B-3	48.51	45.70	5.79
	B-4	48.16	46.09	5.75	B-4	48.55	45.65	5.80
	目標含有量	48.15	46.10	5.75	目標含有量	48.15	46.10	5.75
	最大値	48.18	46.15	5.75	最大値	48.56	46.47	5.80
最小値	48.10	46.07	5.75	最小値	47.82	45.64	5.71	
本発明インゴット直胴部横断面				従来インゴット直胴部横断面				

5/23

図6



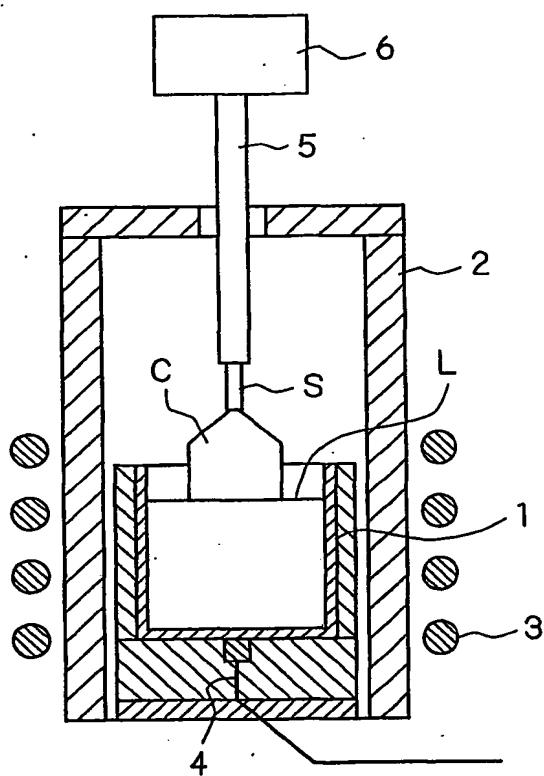
成長縞

発生：
発生しない：



6/23

図7



7/23

図8

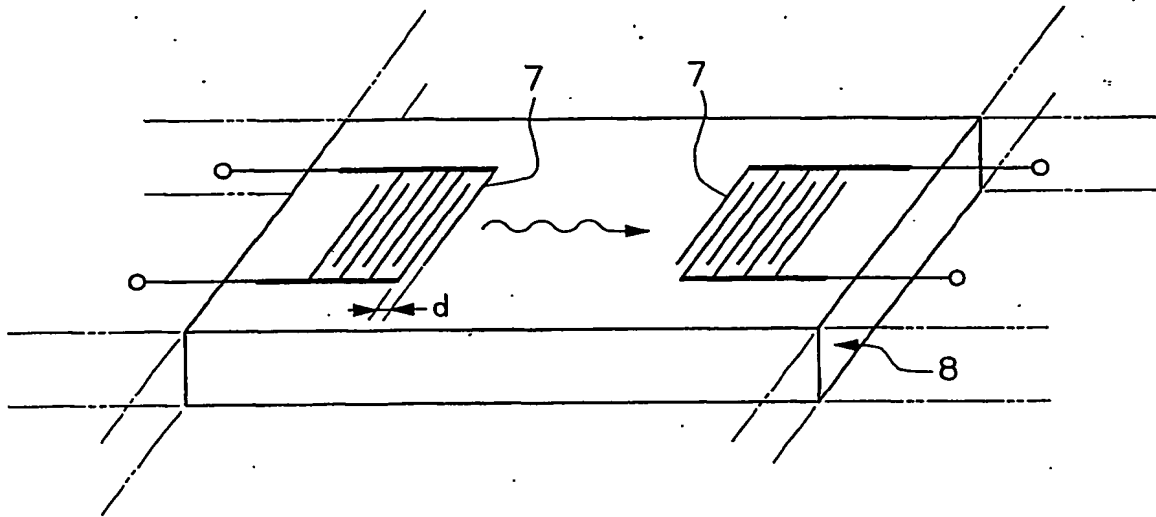
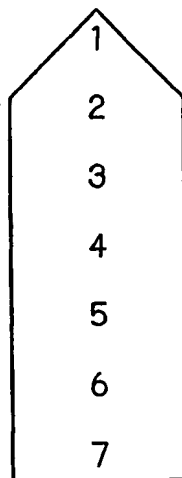
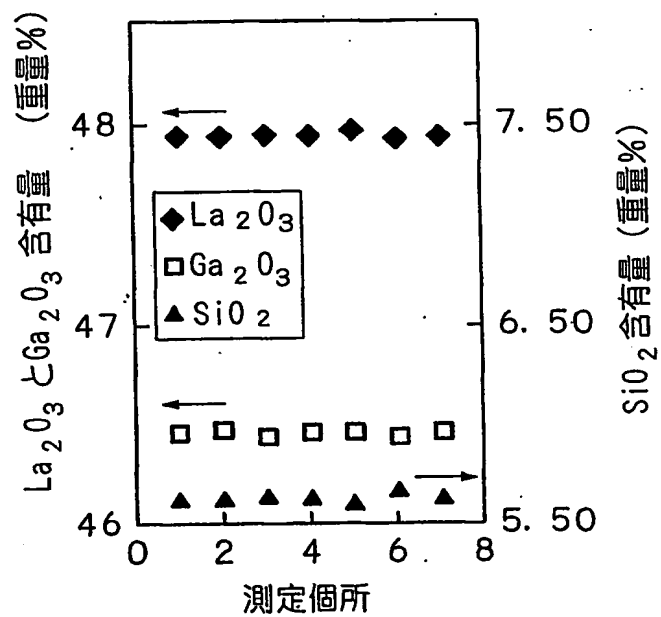


図9



8/23

図10



10/23

図12

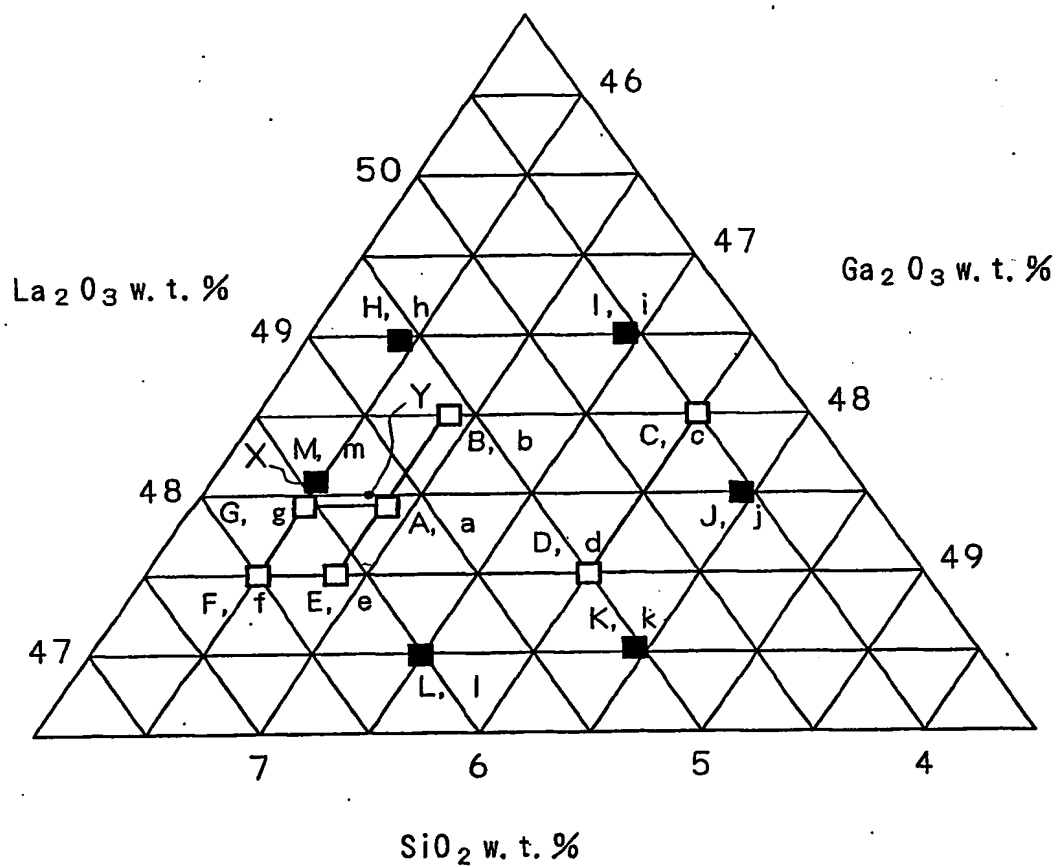
試料 番号	混合比(重量%)			結晶組成(重量%)			結果
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂	成長縞
A	47.81	46.50	5.69	47.82	46.50	5.68	無し
B	47.97	46.26	5.77	47.97	46.27	5.76	無し
C	48.04	46.50	5.46	48.03	46.49	5.48	無し
D	47.94	46.42	5.64	47.94	46.43	5.63	無し
①	47.99	46.15	5.86	47.83	46.12	6.06	発生
②	47.61	46.60	5.79	47.38	46.67	5.95	発生
③	48.30	46.20	5.50	48.53	46.13	5.34	発生
④	47.70	46.80	5.50	47.58	47.02	5.40	発生
⑤	47.70	46.30	6.00	47.45	46.27	6.29	発生

図13

測定箇所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
1	47.93	46.45	5.62
2	47.92	46.46	5.62
3	47.93	46.43	5.64
4	47.92	46.45	5.63
5	47.95	46.45	5.60
6	47.91	46.46	5.63
7	47.92	46.45	5.63
目標含有量	47.93	46.45	5.62
最大値	47.95	46.46	5.64
最小値	47.91	46.43	5.60

11/23

図 14



2次相

発生 : ■

発生しない : □

12/23

図 15

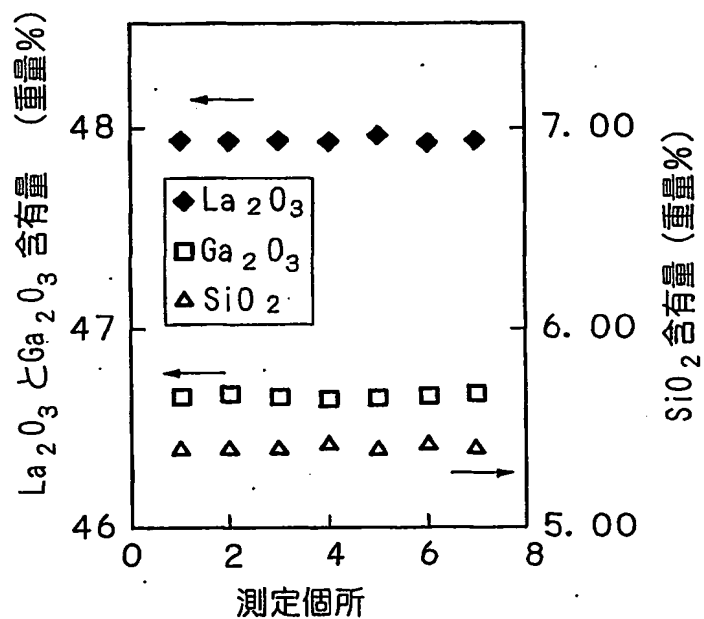
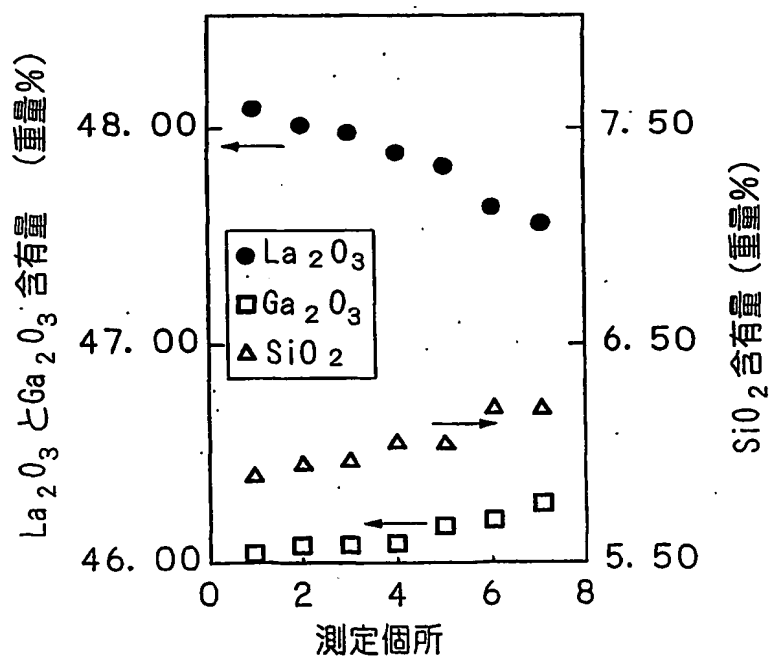
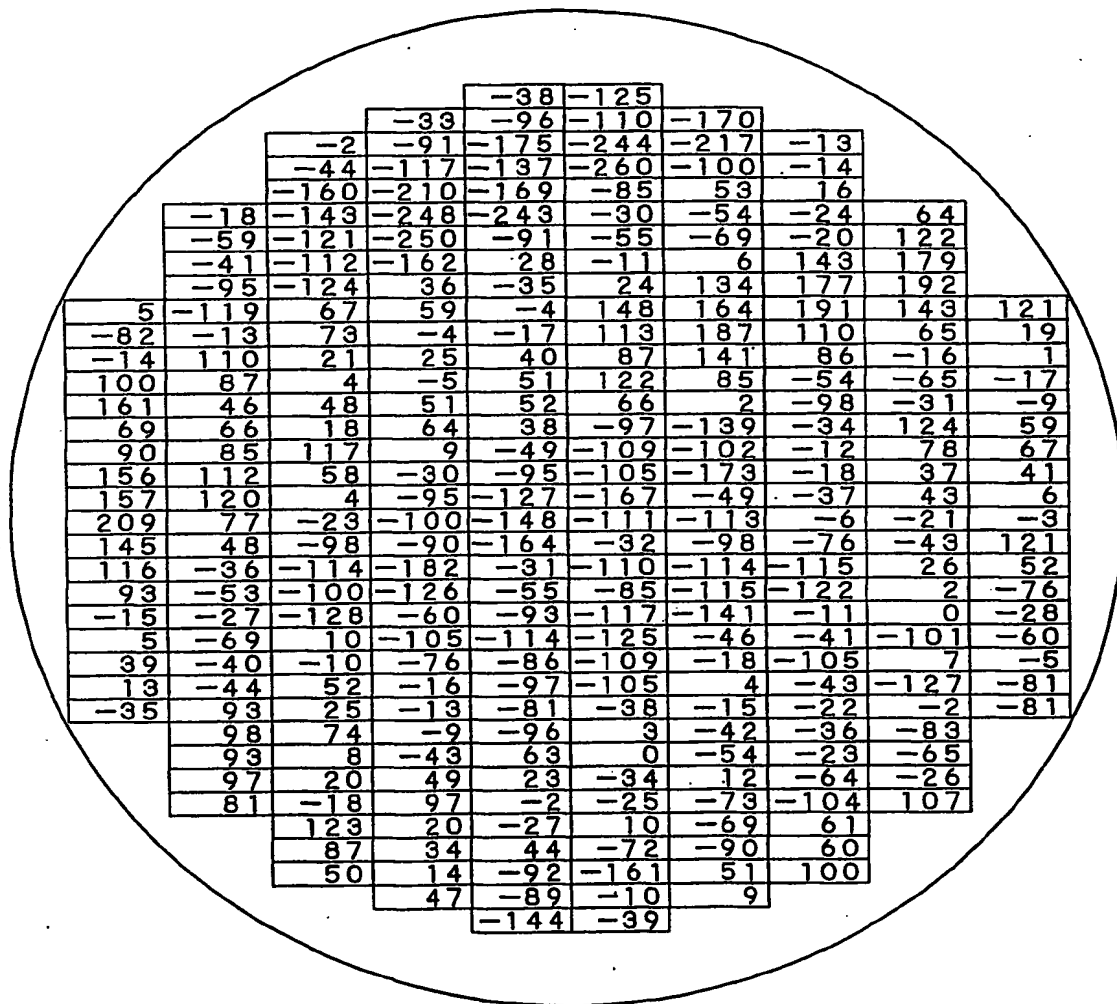


図 16



13/23

図 17



14/23

図18

試料 番号	混合比(重量%)			結晶組成(重量%)			結果
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂	二 次 相
A	47.98	46.32	5.70	47.98	46.32	5.70	無し
B	48.50	46.32	5.18	48.48	46.32	5.20	無し
C	48.50	47.50	4.00	48.49	47.49	4.02	無し
D	47.50	47.50	5.00	47.52	47.49	4.99	無し
E	47.50	46.32	6.18	47.52	46.32	6.16	無し
F	47.50	46.00	6.50	47.51	46.01	6.48	無し
G	47.98	46.00	6.02	47.98	46.02	6.00	無し
H	49.00	46.00	5.00	48.65	46.31	5.04	発生
I	49.00	47.00	4.00	48.62	47.14	4.24	発生
J	48.00	48.00	4.00	47.96	47.75	4.29	発生
K	47.00	48.00	5.00	47.36	47.60	5.04	発生
L	47.00	47.00	6.00	47.36	46.79	5.85	発生
M	48.04	46.06	5.90	47.95	46.33	5.72	発生

15/23

図19

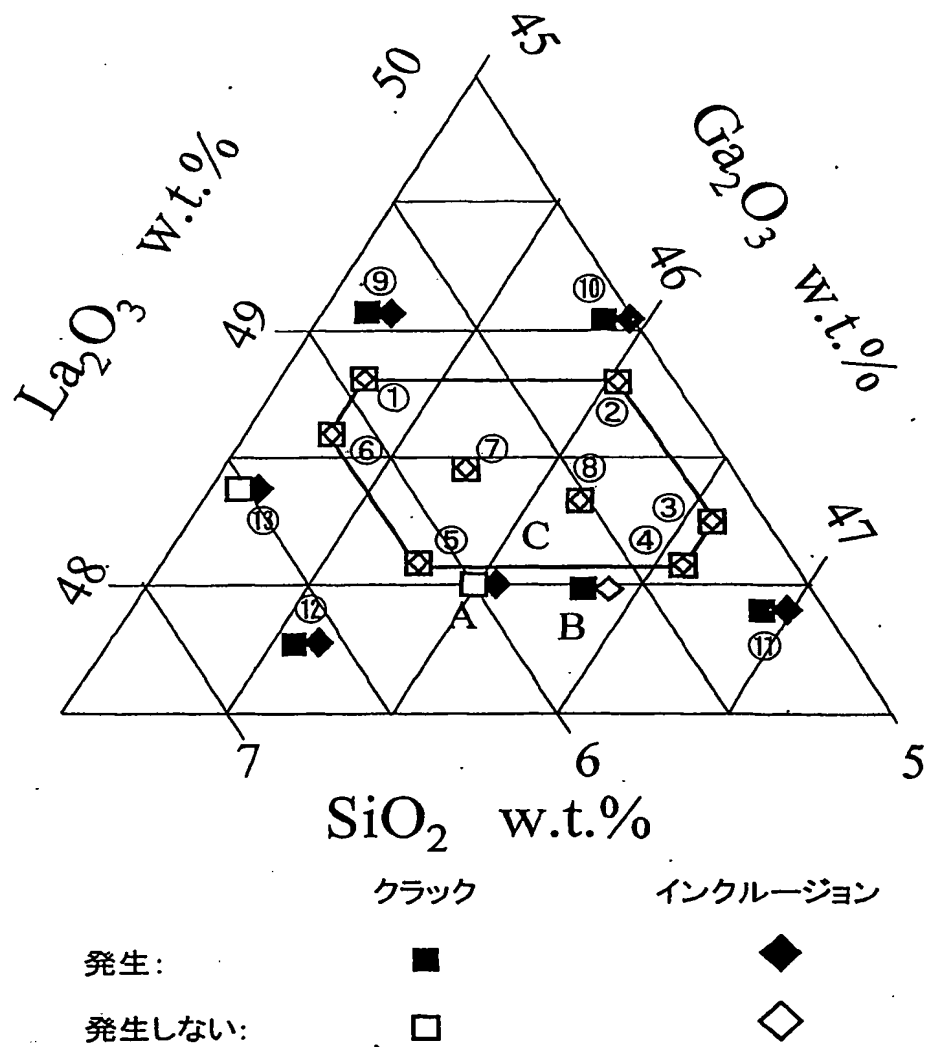
測定個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
1	47.93	46.66	5.41
2	47.92	46.67	5.41
3	47.93	46.66	5.41
4	47.92	46.65	5.43
5	47.95	46.65	5.40
6	47.91	46.66	5.43
7	47.92	46.67	5.41
目標含有量	47.93	46.66	5.41
最大値	47.95	46.67	5.43
最小値	47.91	46.65	5.40

図20

測定個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
1	48.08	46.03	5.89
2	48.00	46.06	5.94
3	47.97	46.07	5.96
4	47.87	46.08	6.05
5	47.81	46.15	6.04
6	47.62	46.18	6.20
7	47.55	46.26	6.20
目標含有量	48.04	46.06	5.91
最大値	48.08	46.26	6.20
最小値	47.55	46.03	5.89

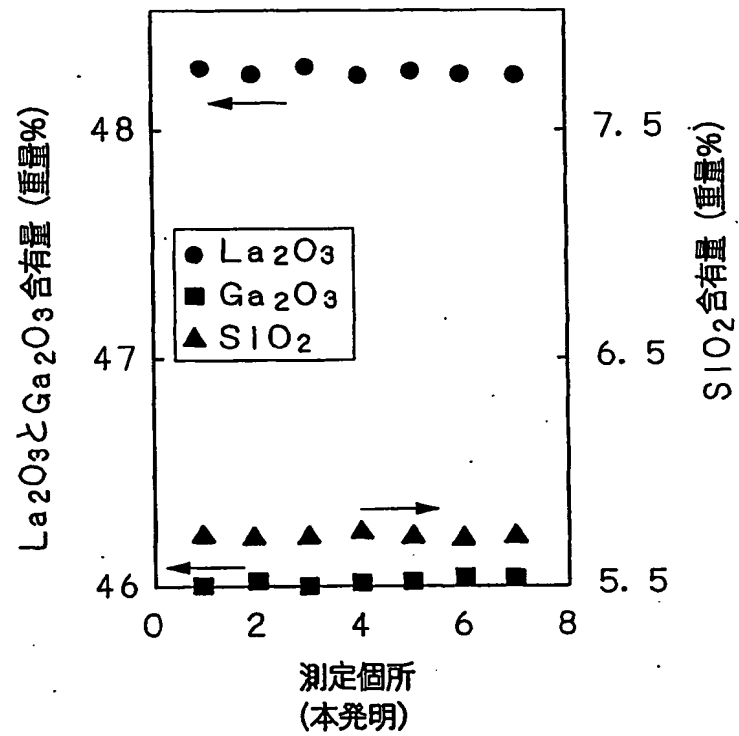
16/23

図21



17/23

図22



18/23

図23a

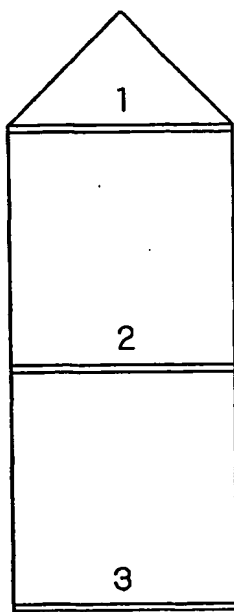


図23b

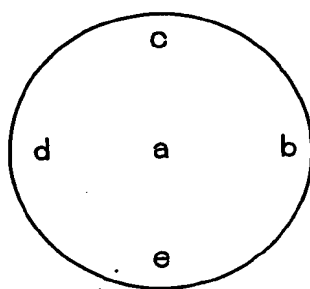
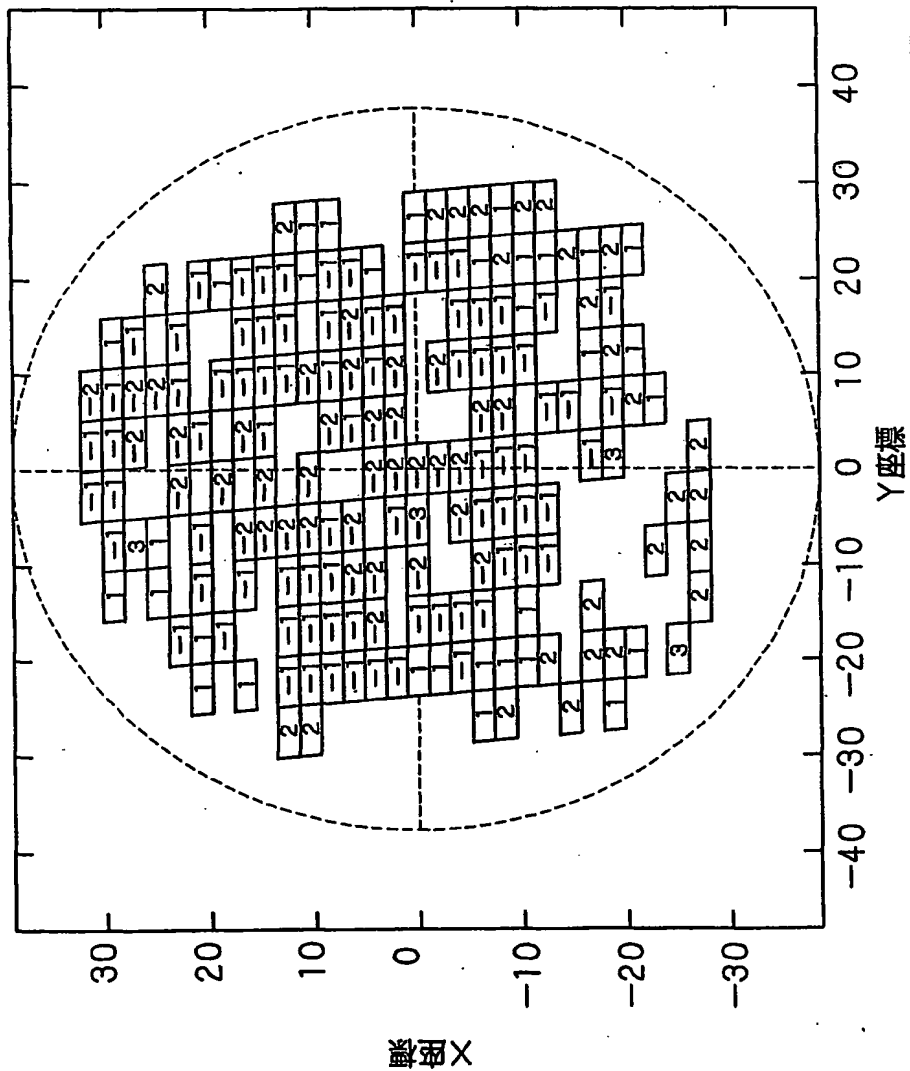


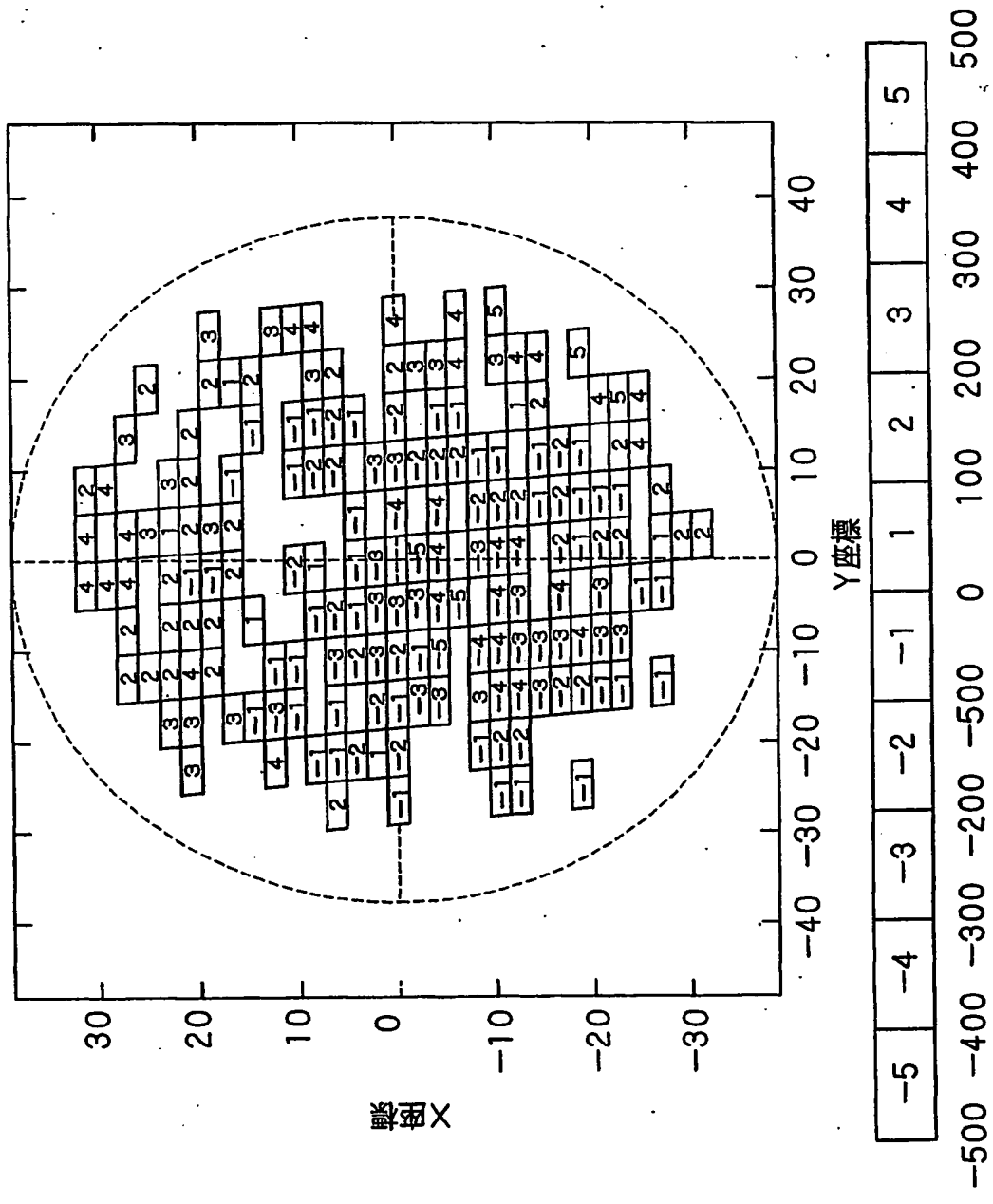
図24



-5	-4	-3	-2	-1	1	2	3	4	5
----	----	----	----	----	---	---	---	---	---

-500 -400 -300 -200 -100 0 100 200 300 400 500

図25



21/23

図26

試料番号	混合比(重量%)			結晶組成(重量%)			結 果	
	La2O3	Ga2O3	SiO2	La2O3	Ga2O3	SiO2	クラック	インクルージョン
①	48.76	45.28	5.96	48.80	45.25	5.95	なし	なし
②	48.75	46.02	5.23	48.80	45.99	5.21	なし	なし
③	48.22	46.55	5.23	48.19	46.60	5.21	なし	なし
④	48.13	46.57	5.30	48.10	46.60	5.30	なし	なし
⑤	48.14	45.72	6.14	48.10	45.71	6.19	なし	なし
⑥	48.54	45.30	6.16	48.56	45.25	6.19	なし	なし
⑦	48.47	45.76	5.77	48.47	45.75	5.78	なし	なし
⑧	48.35	46.22	5.43	48.35	46.21	5.44	なし	なし
⑨	48.90	45.25	5.85	49.10	45.10	5.80	発生	発生
⑩	48.90	45.95	5.15	49.05	45.90	5.05	発生	発生
⑪	48.00	46.75	5.25	47.90	46.90	5.20	発生	発生
⑫	47.90	45.75	6.35	47.79	45.65	6.56	発生	発生
⑬	48.45	45.30	6.25	48.40	45.10	6.50	なし	発生

22/23

図27

本発明

測定個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
1	48.26	46.01	5.73
2	48.24	46.03	5.73
3	48.27	46.00	5.73
4	48.23	46.02	5.75
5	48.25	46.02	5.73
6	48.24	46.04	5.72
7	48.23	46.04	5.73
目標含有量	48.25	46.02	5.73
最大値	48.27	46.04	5.75
最小値	48.23	46.00	5.72

図28

本発明

測定 個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a	48.26	46.01	5.73
b	48.24	46.03	5.73
c	48.23	46.02	5.75
d	48.25	46.01	5.74
e	48.23	46.04	5.73
目標含有量	48.25	46.02	5.73
最大値	48.26	46.04	5.75
最小値	48.23	46.01	5.73

ウエハ1

従来技術

測定 個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a	48.09	46.03	5.89
b	47.83	46.25	5.92
c	47.91	46.16	5.94
d	47.81	46.23	5.96
e	47.86	46.19	5.93
目標含有量	48.04	46.06	5.90
最大値	48.08	46.25	5.96
最小値	47.81	46.03	5.89

ウエハ1

測定 個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a	48.23	46.02	5.75
b	48.25	46.02	5.73
c	48.24	46.03	5.73
d	48.25	46.02	5.73
e	48.26	46.01	5.73
目標含有量	48.25	46.02	5.73
最大値	48.23	46.03	5.75
最小値	48.23	46.01	5.73

ウエハ2

測定 個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a	47.87	46.06	6.05
b	47.72	46.20	6.08
c	47.69	46.21	6.10
d	47.75	46.22	6.03
e	47.70	46.24	6.06
目標含有量	48.04	46.06	5.90
最大値	47.67	46.24	6.10
最小値	47.69	46.08	6.03

ウエハ2

測定 個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a	48.23	46.04	5.73
b	48.22	46.05	5.73
c	48.23	46.04	5.73
d	48.26	46.01	5.73
e	48.23	46.04	5.73
目標含有量	48.25	46.02	5.73
最大値	48.26	46.05	5.73
最小値	48.22	46.01	5.73

ウエハ3

測定 個所	含有量(重量%)		
	La ₂ O ₃	Ga ₂ O ₃	SiO ₂
a	47.55	46.26	6.20
b	47.46	46.29	6.25
c	47.52	46.27	6.21
d	47.40	46.42	6.18
e	47.51	46.25	6.24
目標含有量	48.04	46.06	5.90
最大値	47.55	46.42	6.25
最小値	47.40	46.25	6.20

ウエハ3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP00/09115

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C30B29/34, H03H3/08, H03H9/25

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C30B1/00-35/00, H03H3/08, H03H9/25

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE, JICST FILE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	TAKEDA H. et al., "Effect of starting melt composition on crystal growth of La ₃ Ga ₅ SiO ₁₄ ," Journal of Crystal Growth, Vol. 197, February 1999, pp. 204-209, especially, p.205	1-15
X A	UDA S. et al., "Growth of a 3" langasite crystal with clear faceting," Journal of Crystal Growth, Vol. 211, April 2000, pp. 318-324, especially, pp.319-320	5-10, 14, 15 1-4, 11-13

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 February, 2001 (09.02.01)Date of mailing of the international search report
20 February, 2001 (20.02.01)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C30B29/34, H03H3/08, H03H9/25

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C30B1/00-35/00, H03H3/08, H03H9/25

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
 CAS ONLINE, JICST科学技術文献ファイル

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	TAKEDA H. et al., "Effect of starting melt composition on crystal growth of La ₃ Ga ₅ SiO ₁₄ ," Journal of Crystal Growth, Vol. 197, Feb. 1999, pp. 204-209, 特に205頁	1-15
X A	UDA S. et al., "Growth of a 3" langasite crystal with clear faceting," Journal of Crystal Growth, Vol. 211, Apr. 2000, pp. 318-324, 特に319-320頁	5-10, 14, 15 1-4, 11-13

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に旨及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09.02.01

国際調査報告の発送日

20.02.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

五十 棲 毅



4G

9440

電話番号 03-3581-1101 内線 3416